

**PATENT APPLICATION**

**IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE**

In re: ~~Submission~~ of

Docket No: Q78292

Satoshi YAMAMOTO, et al.

Appln. No.: 10/700,639

Group Art Unit: 1713

Confirmation No.: 4872

Examiner: Unknown

Filed: November 5, 2003

For: ACRYLIC RESIN, ADHESIVE COMPRISING THE RESIN, AND OPTICAL  
LAMINATE COMPRISING THE ADHESIVE

**SUBMISSION OF PRIORITY DOCUMENT**

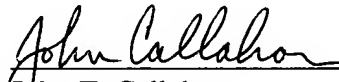
Commissioner for Patents  
P.O. Box 1450  
Alexandria, VA 22313-1450

Sir:

Submitted herewith is a certified copy of the priority document on which a claim to  
priority was made under 35 U.S.C. § 119. The Examiner is respectfully requested to  
acknowledge receipt of said priority document.

Respectfully submitted,

SUGHRUE MION, PLLC  
Telephone: (202) 293-7060  
Facsimile: (202) 293-7860

  
John T. Callahan  
Registration No. 32,607

WASHINGTON OFFICE

**23373**

CUSTOMER NUMBER

**Enclosures: Japan 2002-322418**

Date: February 24, 2004

S. Yamamoto et al.

10/700,639

Filed 11/5/2003

Q78292

10f1

日本国特許庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日  
Date of Application: 2002年11月 6日

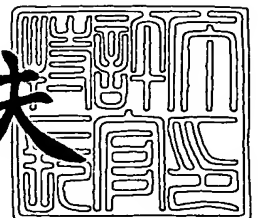
出願番号  
Application Number: 特願2002-322418  
[ST. 10/C]: [JP2002-322418]

出願人  
Applicant(s): 住友化学工業株式会社

2003年11月 4日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

今井康夫



出証番号 出証特2003-3090998

【書類名】 特許願

【整理番号】 P154991

【提出日】 平成14年11月 6日

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 C09J 7/02  
B32B 7/10  
G02F 1/1335

【発明者】

【住所又は居所】 大阪市此花区春日出中3丁目1番98号 住友化学工業株式会社内

【氏名】 山本 敏

【発明者】

【住所又は居所】 大阪市此花区春日出中3丁目1番98号 住友化学工業株式会社内

【氏名】 岩田 智

【発明者】

【住所又は居所】 大阪市此花区春日出中3丁目1番98号 住友化学工業株式会社内

【氏名】 橋本 由美子

【特許出願人】

【識別番号】 000002093

【氏名又は名称】 住友化学工業株式会社

【代理人】

【識別番号】 100093285

【弁理士】

【氏名又は名称】 久保山 隆

【電話番号】 06-6220-3405

## 【選任した代理人】

【識別番号】 100113000

【弁理士】

【氏名又は名称】 中山 亨

【電話番号】 06-6220-3405

## 【選任した代理人】

【識別番号】 100119471

【弁理士】

【氏名又は名称】 榎本 雅之

【電話番号】 06-6220-3405

## 【手数料の表示】

【予納台帳番号】 010238

【納付金額】 21,000円

## 【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 0212949

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

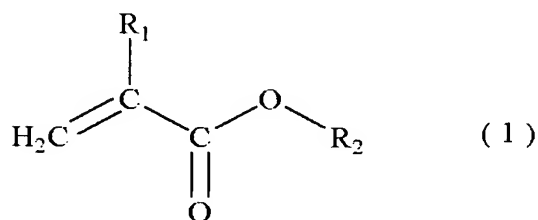
【発明の名称】 アクリル樹脂、該樹脂を含有する粘着剤、及び該粘着剤を積層してなる光学積層体

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

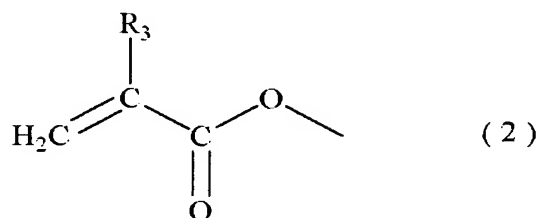
下記(a)、(b)及び(c)を共重合して得られるアクリル樹脂。

(a): 下記一般式 (1) で表される (メタ) アクリル酸エステル



(式中、R<sub>1</sub> は水素原子またはメチル基を表し、R<sub>2</sub> は炭素数 1～14 のアルキル基またはアラルキル基を表す。R<sub>2</sub> のアルキルまたはアラルキル基は炭素数が 1～10 のアルコキシ基で置換されていてもよい。)

(b): 分子内に下記一般式 (2) で表される (メタ) アクリロイル基を少なくとも 2 個含有するモノマー



(式中、R<sub>3</sub> は水素原子またはメチル基を表す。)

(c): カルボキシ基、水酸基、アミド基、エポキシ基、アルデヒド基、イソシアネート基からなる群から選ばれる少なくとも一つの極性官能基と、一つのオレフィン性二重結合とを分子内に含有するモノマー

【請求項 2】

請求項 1 記載のアクリル樹脂と、硬化剤及び／又はシラン系化合物とを配合してなる粘着剤。

【請求項 3】

光学フィルムの両面または片面に請求項 2 に記載の粘着剤を積層してなる粘着

剤付光学フィルム。

**【請求項 4】**

光学フィルムが、偏光フィルム及び／又は位相差フィルムであることを特徴とする請求項 3 に記載の粘着剤付光学フィルム。

**【請求項 5】**

光学フィルムが、さらにアセチルセルロース系フィルムを保護フィルムとして貼着してなる光学フィルムであることを特徴とする請求項 4 に記載の粘着剤付光学フィルム。

**【請求項 6】**

粘着剤付光学フィルムの粘着剤層に、さらに、剥離フィルムを積層してなる請求項 3 ～ 5 のいずれかに記載の粘着剤付光学フィルム。

**【請求項 7】**

請求項 3 ～ 5 のいずれかに記載の粘着剤付光学フィルムの粘着剤層にガラス基材を積層してなる光学積層体。

**【請求項 8】**

請求項 6 に記載の粘着剤付光学フィルムから剥離フィルムを剥離したのち、剥離して得られた粘着剤層にガラス基材を積層してなる光学積層体。

**【発明の詳細な説明】**

**【0001】**

**【発明の属する技術分野】**

本発明は、アクリル樹脂、該樹脂を含有する粘着剤、及び該粘着剤を積層してなる光学積層体に関する。

**【0002】**

**【従来の技術】**

TFT、STNなどの液晶表示装置に一般に用いられている液晶セルは、液晶成分が二枚のガラス基材間に挟持された構造を有している。そして、該ガラス基材の表面には、アクリル樹脂を主成分とする粘着剤を介して、偏光フィルム、位相差フィルムなどの光学フィルムが積層されている。

そして、ガラス基板、粘着剤及び光学フィルムを順次積層してなる光学積層体

は、まず、光学フィルムに粘着剤を積層して得られる粘着剤付光学フィルムを製造し、続いて、粘着剤の面にガラス基材を積層する方法が、一般に用いられている。

#### 【0003】

このような粘着剤付光学フィルムは、熱または湿熱条件下では伸縮による寸法変化が大きいためカール等を生じ易く、得られる光学積層体の粘着剤層内で発泡したり、粘着剤層とガラス基材との間の浮剥れ等が発生するという問題があった。さらに、熱または湿熱条件下では粘着剤付光学フィルムに作用する残留応力の分布が不均一となり、光学積層体の外周部に応力集中が生じる結果、TN液晶セル(TFT)では白抜け、STN液晶セルでは色ムラが起こるという問題があった。

かかる問題を解消するために、粘着剤として、アクリル樹脂に可塑剤を配合してなる粘着剤(例えば、特許文献1)などが提案されている。

#### 【0004】

【特許文献1】特開平9-87593号公報(〔特許請求の範囲〕参照)

#### 【0005】

##### 【発明が解決しようとする課題】

本発明の目的は、可塑剤を配合することがなくとも、光学フィルムの伸縮等により生じる応力集中を緩和し、光学積層体の白抜けや色ムラを抑制するとともに、光学積層体における光学フィルムと粘着剤層と間の浮剥れや、粘着剤層内での発泡を抑制し得る、粘着剤に好適なアクリル樹脂；該アクリル樹脂を含有する粘着剤；該粘着剤と光学フィルムとからなる粘着剤付光学フィルム、該粘着剤付光学フィルムの粘着剤層を介して光学フィルムとガラス基板とが積層してなる光学積層体を提供することである。

#### 【0006】

##### 【課題を解決するための手段】

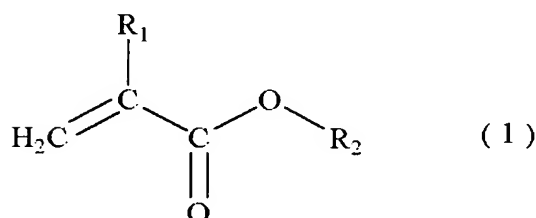
本発明者らは、かかる課題を解決するために鋭意検討した結果、特定のアクリル樹脂が、粘着剤として好適であることを見出すとともに、光学積層体から粘着剤付光学フィルムを貼り直すと、該フィルムを剥離した後の粘着剤層と接してい

たガラス基材の表面に、曇りや糊残り等がほとんど発生しないこと、すなわちリワーク性に優れていることを見出し、本発明を完成した。

# 【0007】

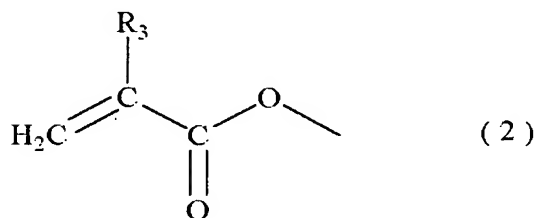
すなわち、本発明は、下記(a)、(b)及び(c)を共重合して得られるアクリル樹脂；該アクリル樹脂と、硬化剤及び／又はシラン系化合物とを配合してなる粘着剤；光学フィルムの両面または片面に該粘着剤を積層してなる粘着剤付光学フィルム；該粘着剤付光学フィルムの粘着剤層にガラス基材を積層してなる光学積層体である。

(a)：下記一般式(1)で表される(メタ)アクリル酸エステル



(式中、R<sub>1</sub>は水素原子またはメチル基を表し、R<sub>2</sub>は炭素数1～14のアルキル基またはアラルキル基を表す。R<sub>2</sub>のアルキルまたはアラルキル基は炭素数が1～10のアルコキシ基で置換されていてもよい。)

(b)：分子内に下記一般式(2)で表される(メタ)アクリロイル基を少なくとも2個含有するモノマー



(式中、R<sub>3</sub>は水素原子またはメチル基を表す。)

(c)：カルボキシ基、水酸基、アミド基、エポキシ基、アルデヒド基、イソシアネート基からなる群から選ばれる少なくとも一つの極性官能基と、一つのオレフィン性二重結合とを分子内に含有するモノマー

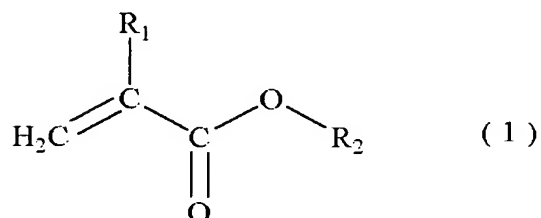
# 【0008】

## 【発明の実施の形態】

以下、本発明について詳細に説明する。



本発明に用いられる単量体(a)は、下記一般式(1)で表される(メタ)アクリル酸エステルである。



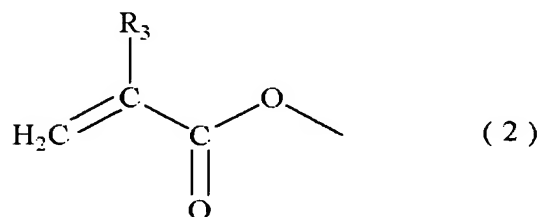
(式中、R<sub>1</sub>は水素原子またはメチル基を表し、R<sub>2</sub>は炭素数1～14のアルキル基またはアラルキル基を表す。R<sub>2</sub>のアルキルまたはアラルキル基は炭素数が1～10のアルコキシ基で置換されていてもよい。)

#### 【0009】

ここで、単量体(a)としては、例えば、メチルアクリレート、エチルアクリレート、プロピルアクリレート、n-ブチルアクリレート、iso-ブチルアクリレート、2-エチルヘキシルアクリレート、n-オクチルアクリレート、iso-オクチルアクリレート、ラウリルアクリレート、ステアリルアクリレート、シクロヘキシルアクリレート、ベンジルアクリレート、メトキシエチルアクリレート及びエトキシメチルアクリレートなどのアクリル酸エステル；メチルメタクリレート、エチルメタクリレート、プロピルメタクリレート、n-ブチルメタクリレート、iso-ブチルメタクリレート、2-エチルヘキシルメタクリレート、n-オクチルメタクリレート、iso-オクチルメタクリレート、ラウリルメタクリレート、ステアリルメタクリレート、シクロヘキシルメタクリレート、ベンジルメタクリレート、メトキシエチルメタクリレート及びエトキシメチルメタクリレートなどのメタクリル酸エステル等を挙げることができる。

#### 【0010】

単量体(b)とは、分子内に下記一般式(2)で表される(メタ)アクリロイル基を少なくとも2個含有するモノマーである。



(式中、 $R_3$  は水素原子またはメチル基を表す。)

#### 【0011】

具体的には、1, 4-ブタンジオールジ(メタ)アクリレート、1, 6-ヘキサジオール(メタ)ジアクリレート、1, 9-ノナンジオールジ(メタ)アクリレート、エチレングリコールジ(メタ)アクリレート、ジエチレングリコールジ(メタ)アクリレート、テトラエチレングリコールジ(メタ)アクリレート、トリプロピレングリコールジ(メタ)アクリレート等、分子内に2個の(メタ)アクリロイル基を有するモノマー；トリメチロールプロパントリ(メタ)アクリレート等の分子内に3個の(メタ)アクリロイル基を有するモノマーが挙げられる。

単量体(b)として、2種以上の単量体(b)を使用してもよい。

単量体(b)の中でも、分子内に2個の(メタ)アクリロイル基を有するモノマーが好ましい。

#### 【0012】

単量体(c)とは、カルボキシ基、水酸基、アミド基、エポキシ基、アルデヒド基、イソシアネート基からなる群から選ばれる少なくとも一つの極性官能基と、1つのオレフィン性二重結合とを分子内に含有するモノマーである。

#### 【0013】

具体的には、極性官能基がカルボキシ基である単量体としては、例えば、アクリル酸、メタクリル酸、マレイン酸、イタコン酸、無水マレイン酸等が挙げられ、極性官能基が水酸基である単量体としては、例えば、2-ヒドロキシエチル(メタ)アクリレート、2-ヒドロキシプロピル(メタ)アクリレート、4-ヒドロキシブチル(メタ)アクリレート等が挙げられる。極性官能基がアミド基である単量体としては、例えば、アクリルアミド、メタクリルアミド、N-メチロールアクリルアミド等が挙げられ、極性官能基がエポキシ基である単量体としては、例えば、グリシジルアクリレート、グリシジルメタクリレート等が挙げられる。

単量体(c)として、2種以上の単量体(c)を使用してもよい。

単量体(c)の中でも、極性官能基がカルボキシ基及び水酸基である単量体が好

適である。

#### 【0014】

本発明のアクリル樹脂における単量体(a)に由来する構造単位の含有量としては、通常、75～99.49重量%程度であり、好ましくは73～99重量%程度である。本発明のアクリル樹脂における単量体(b)に由来する構造単位の含有量としては、通常、0.01～5重量%であり、好ましくは0.1～2重量%程度である。単量体(b)に由来する構造単位の含有量が0.01重量%以上であると得られる樹脂の凝集力が向上する傾向にあることから好ましく、5重量%以下であると、樹脂を製造する際のゲルの生成が抑制される傾向にあることから好ましい。単量体(c)に由来する構造単位の含有量としては、通常、0.5～20重量%程度であり、好ましくは0.5～15重量%程度である。単量体(c)の含有量が0.5重量%以上であると得られる樹脂の凝集力が向上する傾向にあることから好ましく、20重量%以下であると光学フィルムと粘着剤層との浮剥れが抑制される傾向にあることから好ましい。

#### 【0015】

本発明のアクリル樹脂を製造する際には、単量体(a)～(c)のいずれとも異なるビニル系単量体とともに重合させてもよい。該ビニル系単量体としては、例えば、脂肪酸ビニルエステル、ジアルキルアミノ基を含有する(メタ)アクリル酸エステル、ジアルキルアミノ基を含有する(メタ)アクリルアミド、ハロゲン化ビニル、ハロゲン化ビニリデン、芳香族ビニル、(メタ)アクリロニトリル、共役ジエン化合物などが挙げられる。

#### 【0016】

ここで、脂肪酸ビニルとしては、例えば、酢酸ビニル、プロピオン酸ビニル、酪酸ビニル、2-エチルヘキサン酸ビニル、ラウリン酸ビニルなどが挙げられる。ジアルキルアミノ基を含有する(メタ)アクリル酸エステルとしては、例えば、ジメチルアミノエチル(メタ)アクリレートが挙げられ、ジアルキルアミノ基を含有する(メタ)アクリルアミドとしては、例えば、ジメチルアミノプロピル(メタ)アクリルアミドが挙げられる。

#### 【0017】

ハロゲン化ビニルとしては、塩化ビニルおよび臭化ビニル等が例示され、ハロゲン化ビニリデンとしては、塩化ビニリデン等が例示され、(メタ)アクリロニトリルとしては、アクリロニトリル、メタクリロニトリルが例示される。

共役ジエン化合物とは、分子内に共役二重結合を有するオレフィンであり、具体例としては、イソプレン、ブタジエン、クロロプレンなどが挙げられる。

芳香族ビニルとは、ビニル基と芳香族基を有する化合物であり、具体例としては、スチレン、メチルスチレン、ジメチルスチレン、トリメチルスチレン、エチルスチレン、ジエチルスチレン、トリエチルスチレン、プロピルスチレン、ブチルスチレン、ヘキシルスチレン、ヘプチルスチレン、オクチルスチレン、フロロスチレン、クロロスチレン、ブロモスチレン、ジブロモスチレン、ヨードスチレン、ニトロスチレン、アセチルスチレンおよびメトキシスチレン、ジビニルベンゼンなどのスチレン系単量体；、ビニルピリジン、ビニルピロリドン、ビニルカルバゾールなどの含窒素芳香族ビニルなどが挙げられる。

#### 【0018】

本発明のアクリル樹脂を製造する方法としては、例えば、溶液重合法、乳化重合法、塊状重合法、懸濁重合法などが挙げられる。

アクリル樹脂の製造において、通常、重合開始剤が用いられる。重合開始剤は単量体(a)～(c)の合計重量100部に対して0.001～5重量部程度使用される。

重合開始剤としては、熱重合開始剤や光重合開始剤などが例示され、光重合開始剤としては、例えば、4-(2-ヒドロキシエトキシフェニル)などが挙げられる。熱重合開始剤としては、例えば、2,2'-アゾビスイソブチロニトリル、2,2'-アゾビス(2-メチルブチロニトリル)、1,1'-アゾビス(シクロヘキサン-1-カルボニトリル)、2,2'-アゾビス(2,4-ジメチルバレロニトリル)、2,2'-アゾビス(2,4-ジメチル-4-メトキシバレロニトリル)、ジメチル-2,2'-アゾビス(2-メチルプロピオネート)、4,4'-アゾビス(4-シアノバレリク酸)、2,2'-アゾビス(2-ヒドロキシメチルプロピオニトリル)などのアゾ系化合物；tert-ブチルハイドロパーオキシド、過酸化ベンゾイル、tert-ブチルパーオキシベンゾエ

ート、クメンヒドロパーオキシド、ジイソプロピルパーオキシジカーボネート、  
ジ-n-プロピルパーオキシジカーボネート、tert-ブチルパーオキシネオ  
デカノエート、tert-ブチルパーオキシピバレート、(3, 5, 5-トリメ  
チルヘキサノイル) パーオキシドなどの有機過酸化物；過硫酸カリウム、過硫酸  
アンモニウム、過酸化水素など無機過酸化物等が挙げられる。

また、熱重合開始剤と還元剤を併用したレドックス系開始剤なども重合開始剤  
として使用し得る。

#### 【0019】

本発明の製造方法としては、中でも、溶液重合法が好ましい。

溶液重合法の具体例としては、単量体(a)～(c)、及び、必要に応じて単量体(a)  
～(c)のいずれとも異なるビニル系単量体、並びに有機溶媒を混合し、窒素雰  
囲気下にて、熱重合開始剤を添加して、40～90℃程度、好ましくは60～70  
℃程度にて3～10時間程度攪拌する方法などが挙げられる。また、反応を制御  
するために、用いる単量体や熱重合開始剤を重合中に添加したり、有機溶媒に溶  
解したのち添加してもよい。

ここで、有機溶媒としては、例えば、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素  
類；酢酸エチル、酢酸ブチル等のエステル類；n-プロピルアルコール、イソプ  
ロピルアルコール等の脂肪族アルコール類；メチルエチルケトン、メチルイソブ  
チルケトン等のケトン類などが挙げられる。

#### 【0020】

かくして得られたアクリル樹脂の粘度としては、アクリル樹脂を30重量%含  
有する酢酸エチル溶液を調製し、該溶液の25℃における粘度が、通常、100  
Pa・s以下、好ましくは50Pa・s以下である。アクリル樹脂の粘度が100  
Pa・s以下にすることにより、光学フィルムの寸法が変化しても、その寸法  
変化に得られる粘着剤層が追隨して変動するので、液晶セルの周縁部の明るさと  
中心部の明るさとの間に差がなくなり、白抜け、色ムラが抑制される傾向にある  
ことから好ましい。

アクリル樹脂の分子量としては、ゲルパーミエーションクロマトグラフィ (G  
PC) の光散乱法による重量平均分子量が、通常、 $5 \times 10^5$ 以上、好ましくは

$2 \times 10^6$  以上である。重量平均分子量が  $5 \times 10^5$  より高い場合、高温高湿下での接着性が向上し、光学フィルムと粘着剤層との間の浮剥れが低下する傾向があり、しかもリワーク性が向上する傾向にあることから好ましい。

#### 【0021】

本発明のアクリル樹脂は、例えば、粘着剤、接着剤、塗料、増粘剤等にそのまま使用してもよい。また、アクリル樹脂に硬化剤及び／又はシラン系化合物を配合してなる組成物が、粘着剤として好適である。

ここで、硬化剤とは、極性官能基と架橋し得る官能基を分子内に2個以上有するものであり、具体的にはイソシアネート系化合物、エポキシ系化合物、アミン系化合物、金属キレート系化合物およびアジリジン系化合物などが例示される。

#### 【0022】

ここで、イソシアネート系化合物とは、例えば、トリレンジイソシアネート、ヘキサメチレンジイソシアネート、イソホロンジイソシアネート、キシリレンジイソシアネート、水添キシリレンジイソシアネート、ジフェニルメタンジイソシアネート、水添ジフェニルメタンジイソシアネート、テトラメチルキシリレンジイソシアネート、ナフタレンジイソシアネート、トリフェニルメタントリイソシアネート、ポリメチレンポリフェニルイソシアネートなどが挙げられる。また、前記イソシアネート化合物にトリメチロールプロパンなどポリオールとを反応せしめたアダクト体についても本発明の硬化物である。

#### 【0023】

エポキシ系化合物としては、例えば、ビスフェノールA型のエポキシ樹脂、エチレングリコールグリシジルエーテル、ポリエチレングリコールジグリシジルエーテル、グリセリンジグリシジルエーテル、グリセリントリグリシジルエーテル、1,6-ヘキサンジオールジグリシジルエーテル、トリメチロールプロパントリグリシジルエーテル、ジグリシジルアニリン、N,N,N',N'-テトラグリシジル-m-キシレンジアミンおよび1,3-ビス(N,N'-ジグリシジルアミノメチル)シクロヘキサンなどが挙げられる。

#### 【0024】

アミン系化合物としては、例えば、ヘキサメチレンジアミン、エチレンジアミ

ン、ポリエチレンイミン、ヘキサメチレンテトラミン、ジエチレントリアミン、トリエチレンテトラミン、イソホロンジアミン、トリエチレンジアミン、ポリアミノ樹脂およびメラミン樹脂などを挙げることができる。

金属キレート化合物としては、例えば、アルミニウム、鉄、銅、亜鉛、スズ、チタン、ニッケル、アンチモン、マグネシウム、バナジウム、クロムおよびジルコニウムなどの多価金属に、アセチルアセトンやアセト酢酸エチルが配位した化合物などが挙げられる。

#### 【0025】

アジリジン系化合物としては、例えば、N,N'-ジフェニルメタン-4,4'-ビス(1-アジリジンカルボキサイド)、N,N'-トルエン-2,4-ビス(1-アジリジンカルボキサミド)、トリエチレンメラミン、ビスイソフタロイル-1-(2-メチルアジリジン)、トリ-1-アジリジニルホスフィンオキサイド、N,N'-ヘキサメチレン-1,6-ビス(1-アジリジンカルボキサイド)、トリメチロールプロパン-トリ- $\beta$ -アジリジニルプロピオネートおよびテトラメチロールメタン-トリ- $\beta$ -アジリジニルプロピオネートなどが挙げられる。

#### 【0026】

本発明の粘着剤における硬化剤として、2種類以上の硬化剤を使用してもよい。

粘着剤における硬化剤の使用量としては、アクリル樹脂100重量部に対して、通常、0.005～5重量部程度であり、好ましくは0.01～3重量部程度である。硬化剤の量が0.005重量以上であると、光学フィルムと粘着剤層との間の浮剥れ及びリワーク性が向上する傾向にあることから好ましく、5重量部以下であると、光学フィルムの寸法変化に対して粘着剤層の追随性が優れることから、白抜け、色ムラが低下する傾向にあり、好ましい。

#### 【0027】

本発明の粘着剤に用いられるシラン系化合物としては、通常、例えば、ビニルトリメトキシシラン、ビニルトリエトキシシラン、ビニルトリス(2-メトキシエトキシ)シラン、N-(2-アミノエチル)-3-アミノプロピルメチルジメトキシシラン、N-(2-アミノエチル)-3-アミノプロピルトリメトキシシ

ラン、3-アミノプロピルトリエトキシシラン、3-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、3-グリシドキシプロピルメチルジメトキシシラン、2-(3,4-エポキシシクロヘキシル)エチルトリメトキシシラン、3-クロロプロピルメチルジメトキシシラン、3-クロロプロピルトリメトキシシラン、3-メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、3-メルカプトプロピルトリメトキシシランなどが挙げられる。

本発明の粘着剤に、2種類以上のシラン系化合物を使用してもよい。

#### 【0028】

粘着剤におけるシラン系化合物の使用量としては、樹脂100重量部に対して、通常、0.0001～10重量部程度であり、好ましくは0.01～5重量部の量で使用される。シラン系化合物の量が0.0001重量%以上であると粘着剤層とガラス基板との密着性が向上することから、好ましい。またシラン系化合物の量が10重量部以下であると、粘着剤層からシラン系化合物がブリードアウトすることを抑制し、粘着剤層の凝集破壊を抑制させる傾向にあることから、好ましい。

#### 【0029】

本発明の粘着剤は、上記のようにアクリル樹脂、硬化剤及び／又はシラン系化合物からなるが、さらに、耐候安定剤、タッキファイヤー、可塑剤、軟化剤、染料、顔料、および無機フィラー等を配合させてもよい。

#### 【0030】

本発明の粘着剤付光学フィルムに用いられる光学フィルムとは、光学特性を有するフィルムであり、例えば、偏光フィルム、位相差フィルムなどが挙げられる。

偏光フィルムとは、自然光などの入射光に対して、偏光を出射する機能を持つ光学フィルムである。偏光フィルムとしては、光学軸に対して平行である振動面の直線偏光を吸収し、垂直面である振動面を有する直線偏光を透過する性質を有する直線偏光フィルム、光学軸に対して平行である振動面の直線偏光を反射する偏光分離フィルム、偏光フィルムと後述する位相差フィルムを積層した楕円偏光フィルムなどが挙げられる。



偏光フィルムの具体例としては、一軸延伸されたポリビニルアルコールフィルムにヨウ素、二色性染料などの二色性色素が吸着配向されているものなどが挙げられる。

#### 【0031】

位相差フィルムとは、一軸または二軸などの光学異方性を有する光学フィルムであって、例えば、ポリビニルアルコール、ポリカーボネート、ポリエステル、ポリアリレート、ポリイミド、ポリオレフィン、ポリスチレン、ポリサルホン、ポリエーテルサルホン、ポリビニリデンフルオライド／ポリメチルメタアクリレート、液晶ポリエステル、アセチルセルロース、環状ポリオレフィン、エチレン-酢酸ビニル共重合体ケン化物、ポリ塩化ビニルなどからなる高分子フィルムを1.01～6倍程度に延伸することにより得られる延伸フィルムなどが挙げられる。中でも、ポリカーボネートあるいはポリビニルアルコールを一軸延伸、二軸延伸した高分子フィルムが好ましい。

#### 【0032】

位相差フィルムとしては、一軸性位相差フィルム、広視野角位相差フィルム、低光弾性率位相差フィルム、温度補償型位相差フィルム、LCフィルム（棒状液晶ねじれ配向）、WVフィルム（円盤状液晶傾斜配向）、NHフィルム（棒状液晶傾斜配向）、VACフィルム（完全二軸配向型位相差フィルム）、new VACフィルム（二軸配向型位相差フィルム）などが挙げられる。

#### 【0033】

さらに、これら光学フィルムに保護フィルムをさらに貼着しているものも光学フィルムとして本発明の粘着剤に積層してもよい。保護フィルムとしては、例えば、本発明のアクリル樹脂とは異なるアクリル樹脂フィルム、三酢酸セルロースフィルム等のアセチルセルロース系フィルム、ポリエステル樹脂フィルム、オレフィン樹脂フィルム、ポリカーボネート樹脂フィルム、ポリエーテルエーテルケトン樹脂フィルム、ポリスルホン樹脂フィルム等が挙げられる。保護フィルムには、サリチル酸エステル系化合物、ベンゾフェノン系化合物、ベンゾトリアゾール系化合物、トリアジン系化合物、シアノアクリレート系化合物、ニッケル錯塩系化合物等の紫外線吸収剤を配合されていてもよい。保護フィルムの中でも、ア

セチルセルローズ系フィルムが好適である。

#### 【0034】

本発明の光学積層体とは、粘着剤付光学フィルムの粘着剤層にガラス基材を積層してなるものである。ここで、ガラス基材としては、例えば、液晶セルのガラス基板、防眩用ガラス、サングラス用ガラスなどが挙げられる。

中でも、液晶セルの上部のガラス基板に粘着剤付光学フィルム（上板偏光板）を積層し、液晶セルの下部のガラス基板に別の粘着剤付光学フィルム（下板偏光板）を積層してなる光学積層体は液晶表示装置として使用し得ることから好ましい。

ガラス基材の材料としては、例えば、ソーダライムガラス、低アルカリガラス、無アルカリガラスなどが挙げられる

#### 【0035】

粘着剤付光学フィルムおよび光学積層体の製造方法としては、例えば、剥離フィルムの上に粘着剤を積層し、得られた粘着剤層にさらに光学フィルムを積層したのち、剥離フィルムを剥離して粘着剤付光学フィルムを得、続いて、剥離された粘着剤層とガラス基板の面とを積層して光学積層体を製造する方法；光学フィルムの上に粘着剤を積層し、剥離フィルムを貼り合わせて保護して粘着剤付光学フィルムを製造し、ガラス基板の面と積層する際に、該粘着剤付光学フィルムから剥離フィルムを剥離し、剥離された粘着剤層とガラス基板の面とを積層して光学積層体を製造する方法などが挙げられる。

#### 【0036】

ここで、剥離フィルムとしては、例えば、ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート、ポリカーボネート、ポリアリレート等の各種樹脂からなるフィルムを基材とし、この基材の粘着剤層との接合面に、離型処理（シリコン処理等）が施されたものなどが挙げられる。

#### 【0037】

##### 【実施例】

以下、実施例を挙げて本発明を更に具体的に説明する。尚、実施例中「部」、「%」とあるのは特に断りのない限り重量基準である。また、粘度は、25℃で

ブルックフィールド粘度計により測定した値である。GPCの光散乱法による重量平均分子量測定は、検出器として光散乱光度計と示差屈折計を備えたGPC装置を用い、試料濃度  $5 \text{ mg/ml}$ 、試料導入力  $100 \mu\text{l}$ 、カラム温度  $40^\circ\text{C}$ 、流速  $1 \text{ ml/min}$  の条件で、溶出液としてテトラヒドロフランを用いた。

### 【0038】

#### (実施例1)

##### <アクリル樹脂の製造例>

単量体(a)としてアクリル酸ブチル95部、単量体(b)としてアクリル酸4-ヒドロキシブチル4部及び単量体(c)としてエチレングリコールジアクリレート0.2部の混合溶液を調製した。別途、冷却管、窒素導入管、温度計、攪拌機を備えた反応器に、酢酸エチル233部を仕込み、窒素ガスで装置内の空気を置換したあと、内温を  $70^\circ\text{C}$  に昇温した。アゾビスイソブチロニトリル（以下、AIBNという）0.05部を該反応器に添加したあと、内温を  $65 \sim 75^\circ\text{C}$  に保ちながら、調製された混合溶液を3時間かけて該反応器内に滴下した。その後  $70^\circ\text{C}$  で5時間保温し、反応を完結した。固形分30.5%、重量平均分子量約820万のアクリル樹脂の酢酸エチル溶液を得た。該溶液を固形分30%に調整した粘度は  $4600 \text{ mPa} \cdot \text{s}$  ( $4.6 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ ) であった。

### 【0039】

##### <粘着剤の製造例>

得られたアクリル樹脂の酢酸エチル溶液に、硬化剤であるポリイソシアネート系化合物（商品名：コロネートL、日本ポリウレタン(株)製、固形分0.1部）と、シラン系化合物である  $\gamma$ -グリシドキシプロピルトリメトキシシラン（固形分0.2部）とを混合させた。

### 【0040】

##### <粘着剤付光学フィルムの製造例>

このようにして得られた粘着剤をポリエチレンテレフタレート製剥離フィルム（リンテック社製、商品名：PET3801）に塗布した後、乾燥させた。このとき、乾燥後の粘着剤層は、 $25 \mu\text{m}$  になるように調整した。次いで、光学フィルムとして  $180 \mu\text{m}$  の偏光フィルム（ポリビニルアルコールにヨウ素を吸着さ

せて延伸したものの両面にトリアセチルセルロース系保護フィルムで挟んだ3層構造にしたフィルム)を用い、該光学フィルム上に、得られた剥離フィルムから粘着剤層をラミネーターで積層した後、温度23℃、湿度50%の条件で7日間熟成させて粘着剤付光学フィルムを得た。

#### 【0041】

##### <光学積層体の製造例>

液晶セル用ガラス基板(日本板硝子(株)製ソーダライムガラス)の両面に前記で得られた粘着剤付光学フィルムの粘着剤層を直交ニコルになるように積層し、光学積層体を得た。これを80℃、Dryで500時間保管した場合(条件1)と、60℃、90%RHで500時間保管した場合(条件2)について、それぞれの保管後の光学積層体における耐久性および白抜けの発現状態を目視で観察した。結果を下記要領に分類し、表1にまとめた。

#### 【0042】

##### <耐久性>

耐久性の評価は、以下の4段階で行った。

- ◎ : 浮き、剥れ、発泡等の外観変化が全くみられない。
- : 浮き、剥れ、発泡等の外観変化がほとんどみられない。
- △ : 浮き、剥れ、発泡等の外観変化がやや目立つ。
- × : 浮き、剥れ、発泡等の外観変化が顕著にみとめられる。

#### 【0043】

##### <白抜けの発現状態>

白抜けの発現状態の評価は、以下の4段階で行った。

- ◎ : 白抜けが全くみられない。
- : 白抜けがほとんど目立たない。
- △ : 白抜けがやや目立つ。
- × : 白抜けが顕著にみとめられる。

#### 【0044】

##### <リワーク性>

リワーク性の評価は次のように行った。まず、前記粘着剤付光学フィルムを2

5 mm×1 5 0 mmの試験片に切断した。次に、この試験片を貼付装置（富士プラスチック機械（株） ラミパッカー）を用いて液晶セル用ガラス基板（日本板硝子（株）製 ソーダライムガラス）に積層し、5 0℃、5 kg/cm<sup>2</sup>（4 9 0 . 3 k P a）で2 0 分間オートクレーブ処理を行い、剥離試験用光学積層体を得た。続いて、該剥離試験用光学積層体を2 3℃、相対湿度5 0 % R H雰囲気中にて7 2 0 時間保管し、2 3℃、相対湿度5 0 % R H雰囲気中にてこの貼着試験片を3 0 0 mm/minの速度で1 8 0° 方向に剥離し、得られたガラス板表面の状態を観察した。結果を下記要領に分類し、表 1 にまとめた。

#### 【 0 0 4 5 】

ガラス板表面の状態によりリワーク性の評価を以下の4 段階で行った。

- ◎ ：ガラス板表面に曇りおよび糊残りが全くみられない。
- ：ガラス板表面に曇り等がほとんど認められない。
- △ ：ガラス板表面に曇り等が認められる。
- × ：ガラス板表面に糊残りが認められる。

#### 【 0 0 4 6 】

（実施例 2 ～ 3、比較例 1 ～ 2）

実施例 2 ～ 3 は、重合開始剤である A I B N を表 1 に記載の重量を用いる以外は同様にしてアクリル樹脂、粘着剤及び光学積層体を製造した。得られたアクリル樹脂及び光学積層体の評価結果を表 1 にまとめた。

比較例 1 は、単量体(c)を用いないことと、重合開始剤である A I B N を表 1 に記載の重量を用いる以外は同様にしてアクリル樹脂、粘着剤及び光学積層体を製造した。得られたアクリル樹脂及び光学積層体の評価結果を表 1 にまとめた。

比較例 2 は、単量体(c)を用いないこと、重合開始剤である A I B N を表 1 に記載の重量を用いること、および、アクリル樹脂の酢酸エチル溶液をメタノール中に添加し、沈殿して得られたものから溶媒を分別し、再び、アクリル樹脂の酢酸エチル溶液とする以外は同様にしてアクリル樹脂、粘着剤及び光学積層体を製造した。得られたアクリル樹脂及び光学積層体の評価結果を表 1 にまとめた。

#### 【 0 0 4 7 】

【表 1】

		実施例 1	実施例 2	実施例 3	比較例 1	比較例 2
アクリル 樹脂の製造 (部)	(a)	95	95	95	95	95
	(b)	4	4	4	4	4
	(c)	0.2	0.2	0.2	0	0
	AIBN	0.05	0.09	0.04	0.01	0.05
アクリル 樹脂	粘度 (mPa・s)	4600	1700	9900	5800	513000
	分子量 ( $\times 1000$ )	8,200	3,500	測定 不能	900	7,800
条件 1	耐久性	◎	◎	◎	△	△
	白抜け性	◎	◎	○	◎	×
条件 2	耐久性	◎	○	◎	×	◎
	白抜け性	◎	◎	◎	◎	×
リワーク性	糊残り性	◎	○	◎	×	◎

## 【0048】

## 【発明の効果】

本発明のアクリル樹脂は、柔軟性に優れ、光学フィルムなどに優れた密着性を有する。また、該アクリル樹脂と硬化剤及び／又はシラン系化合物とを配合してなる組成物は粘着剤として好適である。

光学フィルムと該粘着剤とを積層した粘着剤付光学フィルムは、例えば液晶セルのガラス基板に積層すると、本発明の光学積層体を与える。

かかる光学積層体は、湿熱条件下、光学フィルムおよびガラス基板の寸法変化に起因する応力を粘着剤層が吸収・緩和するため、局所的な応力集中を軽減し、ガラス基板に対し粘着剤層が浮剥れを抑制することができる。

また、不均一な応力分布に起因する光学的欠陥を防止することから、ガラス基板がTN液晶セル(TFT)である場合、白ヌケを抑制したり、ガラス基板がSTN液晶セルである場合、色ムラを抑制することができる。

さらに、リワーク性に優れることから、一度積層した粘着剤付光学フィルムを

光学積層体のガラス基板から剥離してもガラス基板の表面に糊残りや曇りを抑制することができる。

【書類名】 要約書

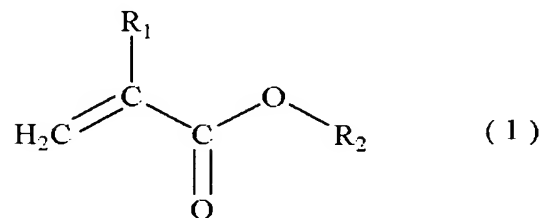
【要約】

【課題】 可塑剤を配合することがなくとも、光学フィルムの伸縮等により生じる応力集中を緩和し、光学積層体の白抜けや色ムラを抑制するとともに、光学積層体における光学フィルムと粘着剤層と間の浮剥れや、粘着剤層内の発泡を抑制し得る、粘着剤に好適なアクリル樹脂を提供する。

【解決手段】 下記(a)、(b)及び(c)を共重合して得られるアクリル樹脂

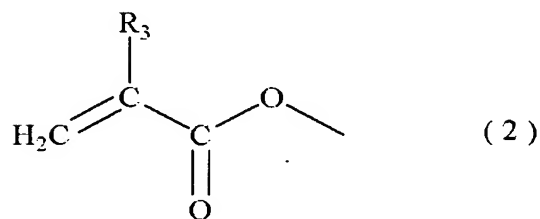
。

(a): 下記一般式(1)で表される(メタ)アクリル酸エステル



(式中、R<sub>1</sub>は水素原子またはメチル基を表し、R<sub>2</sub>は炭素数1～14のアルキル基またはアラルキル基を表す。)

(b): 分子内に下記一般式(2)で表される(メタ)アクリロイル基を少なくとも2個含有するモノマー



(式中、R<sub>3</sub>は水素原子またはメチル基を表す。)

(c): 極性官能基と、一つのオレフィン性二重結合とを分子内に含有するモノマー

—

【選択図】 なし



特願 2 0 0 2 - 3 2 2 4 1 8

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[ 0 0 0 0 0 2 0 9 3 ]

1. 変更年月日

1 9 9 0 年 8 月 2 8 日

[変更理由]

新規登録

住 所

大阪府大阪市中央区北浜 4 丁目 5 番 3 3 号

氏 名

住友化学工業株式会社